

軌道縮退系におけるフラストレーション効果の理論

著者	那須 譲治
号	54
学位授与機関	Tohoku University
学位授与番号	理博第2612号
URL	http://hdl.handle.net/10097/56769

氏名・(本籍)	な す じょう じ 那 須 讓 治
学位の種類	博士(理学)
学位記番号	理博第2612号
学位授与年月日	平成23年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
研究科, 専攻	東北大学大学院理学研究科(博士課程)物理学専攻
学位論文題目	軌道縮退系におけるフラストレーション効果の理論
論文審査委員	(主査) 教授 倉本 義夫 教授 有馬 孝尚 教授 野田 幸男 准教授 石原 純夫 准教授 柴田 尚和

論文目次

第1章 序論

- 1.1 はじめに
- 1.2 強相関電子系における軌道自由度
- 1.3 軌道フラストレーション
- 1.4 軌道自由度を記述する模型
- 1.5 本研究と直接関係する理論研究
- 1.6 本研究の目的と構成

第2章 計算方法

- 2.1 マルチカノニカルモンテカルロ法
- 2.2 Lanczos 法による厳密対角化

第3章 e_g 軌道系におけるリング交換相互作用の効果

- 3.1 理論模型
- 3.2 計算方法: 拡張された Bethe 近似
- 3.3 古典系における計算結果
- 3.4 量子系における計算結果
- 3.5 実験結果との関係についての考察
- 3.6 この章のまとめ

第4章 弱相関から見た軌道の異方性の効果

- 4.1 理論模型

4.2 計算方法：乱雑位相近似

4.3 計算結果

4.4 この章のまとめ

第5章 軌道自由度を有する系における格子の幾何学的効果

5.1 理論模型

5.2 計算方法：平均場近似 +1 次元解析解

5.3 計算結果

5.4 この章のまとめ

第6章 結論

付録 A 蜂の巣格子上の軌道模型

A.1 理論模型

A.2 古典模型の解析結果

A.3 低温における軌道状態の解析

付録 B Bogoliubov 変換

B.1 Bogoliubov 変換の一般論

B.2 スピン系に対する物理量の計算

B.3 具体例として反強磁性ハイゼンベルグ模型

付録 C Holstein-Primakoff 変換

付録 D 有限サイズスケーリングと Binder 比

参考文献

原著論文リスト

謝辞

論文内容要旨

研究の背景

電子の局在性と遍歴性が拮抗する強相関電子系においては、電荷、スピン、軌道の自由度が物性に重要な役割を果たすことが知られている。軌道自由度とは電子の空間分布を意味し、軌道間の相互作用は実空間と密接に関係している点で、スピン間相互作用と本質的に異なる。このため、ある方向の相互作用のエネルギーを得るように軌道の向きを決めた場合、他のボンド方向におけるエネルギーの利得は必ずしも最大とならないという一種のフラストレーションが内在する。このフラストレーションは、低エネルギー領域に多くの縮退を生み、軌道状態に強い揺らぎを引き起こすことが知られている。

これまで強相関電子系における軌道縮退の効果については、巨大磁気抵抗効果を発現するマンガン酸化物や、モット転移が観測されているチタン酸化物やバナジウム酸化物を動機として、実験理論共に精力的に研究されてきた。理論研究では、前述の軌道に内在するフラストレーションにより正確な解析が困難な

ため、近似を用いた解析的研究が主流となっている。

一方で、軌道自由度にはこのフラストレーションにより、これまで考慮されていない微小な相互作用や格子の幾何学的効果が顕在化する可能性がある。その一例として金属絶縁体転移近傍の物質群の軌道状態や圧力効果を挙げることができる。ここでは、これまで行われてきた強相関極限からの最低次の摂動は決して良いものではなく、電子遷移の高次の効果が物性に大きな影響を与えることが予想される。しかしながら、軌道に内在するフラストレーションが電子の遍歴性と局在性の拮抗に与える影響は自明ではない。

研究目的

以上を踏まえ、本研究では軌道に内在するフラストレーションによって生じる特異な現象とその機構の解明を目的とする。特に、これまで無視されてきた効果について着目し、様々な計算方法を適用して多角的な解析を目指す。具体的な研究内容としては、**(1)強相関極限からの摂動の高次の有効相互作用の効果(Ring 交換相互作用の効果)**、**(2)弱相関からの電子相関の効果**、**(3)格子の幾何学的効果**の3つである。以下では主に Ring 交換相互作用の効果について説明し、その他の解析に関しては簡単に述べる。

理論模型

本研究では、以下の2軌道ハバード模型を出発点とし、軌道の異方性に着目して解析を行うためスピン自由度を無視する。

$$H = \sum_{\langle ij \rangle} \sum_{\mu\mu'=u,v} [t_{ij}^{\mu\mu'} c_{i\mu}^\dagger c_{j\mu'} + H.c.] + U \sum_i n_{iu} n_{iv}$$

ここで、サイト i における軌道 $\mu=u,v$ を占有する粒子の生成演算子を $c_{i\mu}^\dagger$ 、粒子数を $n_{i\mu} = c_{i\mu}^\dagger c_{i\mu}$ と定義した。以下で述べる各研究項目では、目的に即して上式をもとに導かれる理論模型を解析に用いた。

(1) Ring 交換相互作用の効果

ペロフスカイト型マンガノ酸化物を念頭におき、立方格子上に e_g 軌道を考える。その対称性によって与えられる遷移積分を $t_{ij}^{\mu\mu'}$ とした。本研究ではこれまで導出されていた t の2次摂動による最近接軌道間相互作用に加えて、新たに4次までの軌道間の有効相互作用を導出した。

2重に縮退した e_g 軌道自由度は大きさ $1/2$ の軌道擬スピン演算子を用いて書き下すことができる。導出された有効模型はこの軌道擬スピンを用いて記述される。本研究では擬スピン演算子を(A)古典的に扱った場合と(B)量子的に扱った場合でそれぞれ解析を行った。以下に用いた方法を列挙する。(A-1)平均場近似、(A-2)マルチカノニカルモンテカルロ法(MUMC)、(B-1)スピン波近似、(B-2)厳密対角化法、(B-3)拡張された Bethe 近似。

強相関極限から4次の摂動展開により導出された有効相互作用の中で最も寄与が大きいのは **Ring 交換相互作用**と呼ばれる4体の相互作用である。通常 e_g 軌道として考える $d_{3z^2-r^2}$ 軌道や $d_{x^2-y^2}$ 軌道は、電気四極子モーメントを持ち、最近接相互作用には四極子間の相互作用のみが現われる。一方で、Ring 交換相互作用には**磁気八極子**間の相互作用が出現する。この磁気八極子は、位相の異なる e_g 軌道の重ね合わせによって作られる。

軌道擬スピンを古典的に扱い、Ring 交換相互作用の効果を MUMC により解析した。従来の最近接軌道間相互作用から予想される反強的四極子秩序(AFQ)は、Ring 交換相互作用に対して不安定であり、キャンセルした四極子秩序(CantQ)が実現する。また、最近接相互作用と Ring 交換相互作用の四極子成分における競合が存在するために CantQ に付随した**八極子秩序(CantQ+OP)**が現れる。次に軌道擬スピンの量子性を取り入れた Bethe 近似を用いて解析を行った。八極子秩序の出現も含め MUMC の計算とコンシステントな結果が得られた。それに加えて、Ring 交換相互作用が大きいとき、**秩序モーメントが抑制**されること

を見出した。この結果はスピン波近似や厳密対角化法によって得られた結果とコンシステントであることを確かめた。

最後に実験との対応を議論する。 e_g 軌道自由度を有するマンガン酸化物 LaMnO_3 において静水圧実験が行われている(I. Loa, et al., PRL(2001))。圧力の印加に伴い Jahn-Teller 効果が消失し、その後金属絶縁体転移を起こす。これは圧力下で軌道秩序を伴わない絶縁相が存在することを示唆する結果である。Ring 交換相互作用の強さは圧力印加に対応するため、Jahn-Teller 効果が消失する近傍の絶縁相では、**八極子秩序**が本研究により予想される。

(2) 弱相関からの電子相関の効果

弱相関からの解析を行うため、軌道フラストレーションを有する 2 軌道ハバード模型を 2 次元正方格子上に考え、乱雑位相近似を用いて解析を行った。

ここでは、軌道に対する外場の応答係数である軌道感受率の空間的な異方性に着目し、電子間相互作用に対する変化を調べた。On-site 相互作用の導入に伴い、低温での感受率の波数依存性に大きな変化が生じる。電子間相互作用を考慮しない感受率は、低温で 1 次元的な発散的増大を示す。一方、電子間相互作用とバンド幅が同程度のときは 1 次元的な発散的増大は消失し、感受率の異方性は失われる。さらに相互作用が増加すると、感受率は 1 次元的な発散的増大を示すが、その方向は弱相関のときとは全く異なるものとなることを見出した。

(3) 格子の幾何学的効果

格子の幾何学的効果として、チェッカーボード格子上に d_{zx} と d_{yz} 軌道の 2 つを考慮したハバード模型を構築し強相関極限の有効模型を導出した。解析方法は(1)で用いた方法に加え量子モンテカルロ法を用いて解析を行った。

代表的な幾何学的フラストレート格子であるチェッカーボード格子上の軌道模型を解析することで、軌道の異方性と格子の幾何学的効果の影響を議論した。この格子には 2 種類のボンドが存在する。この 2 種類のボンド方向の相互作用が拮抗するパラメータ領域近傍では、軌道秩序のリエントラント的振舞いが出現することを見出し、これは熱揺らぎと量子揺らぎにより生じることを明らかにした。また、軌道フラストレーションに起因する軌道状態の方向性の競合が三重臨界点を出現させることを明らかにした。

総括

軌道縮退のある強相関電子系の本質は、その方向性と内在するフラストレーション効果と捉えることができる。本研究では、Ring 交換相互作用、弱相関からの電子相関の効果、格子の幾何学的効果が軌道フラストレーションに及ぼす役割について、具体的な模型を解析することにより調べた。本研究により、軌道に内在するフラストレーションの特徴と、それによって生じる現象の起源が明らかとなった。これにより軌道物理の研究分野に新たな知見を与えることができた。

論文審査の結果の要旨

強相関電子系における軌道の自由度は、マンガン酸化物の巨大磁気抵抗効果や鉄ヒ素化合物における高温超伝導現象の起源に深く関与するものとして、近年精力的な研究が行われている。那須譲治提出の論文は、軌道の自由度が方向性の自由度であることに起因して生ずる一種のフラストレーション効果に焦点を当てている。この効果により低エネルギーにおける多数の縮退や長距離秩序の阻害された軌道液体状態などの新奇な軌道状態の出現が期待される。本論文では、これまで考慮されてこなかった新しい相互作用や格子の幾何学的形状が、軌道縮退系特有のフラストレーション効果と競合・協力をすることによって生ずる新奇な物性を論じている。具体的には、スピンの自由度を無視した2軌道ハバード模型をとり、(1)リング交換相互作用と呼ばれる多体の相互作用の効果、(2)チェッカーボード格子における格子の幾何学的な効果、(3)電子間相互作用の弱い領域における軌道状態などが研究されている。解析には古典・量子モンテカルロ法、数値厳密対角化法、ペーテ近似法などの複数の解析的・数値的計算手法が併用されている特徴がある。

本論文で新しく導出したリング型交換相互作用には、磁気八極子間相互作用ならびに磁気八極子と電気四極子との相互作用が含まれている。この相互作用により、電気四極子秩序と磁気八極子秩序との共存相が出現することを複数の解析結果により示した。またリング型交換相互作用に含まれる電気四極子と磁気八極子との競合により、長距離秩序モーメントが抑制されることを示した。これらの計算結果は、圧力下の LaMnO_3 でヤーンテラー型格子歪みが抑制され、Mott 絶縁体が発現することについて、一つの理論的な解釈を与えた。

これらの理論解析結果は強相関電子系の軌道自由度におけるフラストレーション効果について新たな知見を与えるだけでなく、軌道縮退のある遷移金属酸化物における実験の解析に役立つことが期待される。那須譲治がこの研究を遂行したことは、自立して研究活動を行うに必要な高度の研究能力と学識を有していることを示している。従って那須譲治提出の論文は博士（理学）の学位論文として合格と認める。